

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-3706

(P2002-3706A)

(43) 公開日 平成14年1月9日(2002.1.9)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テグメント(参考)
C 0 8 L 65/00		C 0 8 L 65/00	4 F 0 7 1
C 0 8 J 5/00	C E Z	C 0 8 J 5/00	C E Z 4 J 0 0 2
5/18	C E R	5/18	C E R
C 0 8 K 5/13		C 0 8 K 5/13	
C 0 8 L 25/02		C 0 8 L 25/02	

審査請求 未請求 請求項の数10 O L (全 10 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2000-191634(P2000-191634)

(22) 出願日 平成12年6月26日(2000.6.26)

(71) 出願人 000004455

日立化成工業株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

(72) 発明者 山下 幸彦

千葉県市原市五井南海岸14番地 日立化成工業株式会社五井事業所内

(72) 発明者 岩田 修一

千葉県市原市五井南海岸14番地 日立化成工業株式会社五井事業所内

(74) 代理人 100089244

弁理士 遠山 勉 (外2名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 低吸湿低複屈折樹脂組成物、これから得られる成形材、シート又はフィルムおよび光学用部品

(57) 【要約】

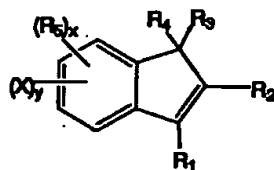
【課題】 低吸湿性、低複屈折性、低誘電率性であり、流動性に優れ、加熱時の色変化が少なく、射出成形時の離型性に優れた樹脂組成物を提供すること。

【解決手段】 下記の重合体 (A)、(B)、ジフェニルシリコーン及びフェノール系酸化防止剤を含む樹脂組成物。

(A) 下記一般式 (I) で示されるインデン又はインデン誘導体を1種またはそれ以上含む重合体であり、側鎖にカルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基を含有する重合体。

(B) スチレン又はスチレン誘導体と共重合可能な単量体から成る重合体であり、側鎖に複素環構造及び／又はアルキルアミノ基を含有する重合体。

【化1】



(I)

(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅、R₆は同一であっても異なっても良く、水素原子；窒素原子；酸素原子又はケイ素原子を含有する1価の炭化水素基；炭素数1～6のアルキル基；1価の芳香族系炭化水素基を示す。Xは水素原子、ハロゲン原子、アシル基、アルコキシ基、ニトリル基を示す。xは0または1～4の整数を示し、yは1～4の整数を示す。但しx+y=4である。)

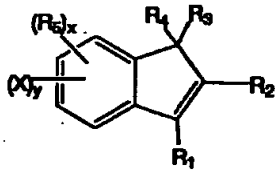
【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記の重合体(A)、(B)、ジフェニルシリコン及びフェノール系酸化防止剤を含む樹脂組成物。

(A) 下記一般式(1)で示されるインデン又はインデン誘導体を1種またはそれ以上含む重合体であり、側鎖にカルボキシル基及び/又はフェノール性水酸基を含有する重合体。

(B) スチレン又はスチレン誘導体と共重合可能な単量体から成る重合体であり、側鎖に複素環構造及び/又はアルキルアミノ基を含有する重合体。

【化1】



(1)

(式中、R₁、R₂、R₃、R₄、R₅、R₆は同一であつても異なつても良く、水素原子；窒素原子；酸素原子又はケイ素原子を含有する1価の炭化水素基；炭素数1～6のアルキル基；1価の芳香族系炭化水素基を示す。Xは水素原子、ハロゲン原子、アシル基、アルコキシ基、ニトリル基を示す。xは0または1～4の整数を示し、yは1～4の整数を示す。但しx+y=4である。)

【請求項2】 飽和吸水率は0.4%以下であり、20.0%延伸時の複屈折率は $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-6}$ の範囲にある請求項1記載の樹脂組成物。

【請求項3】 重合体(A)中のカルボキシル基及び/又はフェノール性水酸基の含有量は、重合体(A)の構成成分に対して0.005～5mol%であり、重合体

(B)中の複素環構造及び/又はアルキルアミノ基の含有量は、重合体(B)の構成成分に対して0.005～5mol%である請求項1又は2に記載の樹脂組成物。

【請求項4】 カルボキシル基及び/又はフェノール性水酸基と、複素環構造及び/又はアルキルアミノ基のモル比は、0.1～10.0である請求項1～3のいずれかに記載の樹脂組成物。

【請求項5】 重合体(A)は、重合体(A)、(B)の総量に対して30～90重量%である請求項1～4のいずれかに記載の樹脂組成物。

【請求項6】 ジフェニルシリコンの添加量は、樹脂組成物総量に対して0.01～1.0重量%であり、フェノール系酸化防止剤の添加量は、樹脂組成物総量に対して0.1～3.0重量%である請求項1～5のいずれかに記載の樹脂組成物。

【請求項7】 請求項1～6のいずれか一項に記載の樹脂組成物を成形して得られる成形材。

【請求項8】 請求項1～6のいずれか一項に記載の樹

脂組成物から得られるシート。

【請求項9】 請求項1～6のいずれか一項に記載の樹脂組成物から得られるフィルム。

【請求項10】 請求項7～9に記載の成形材、シート又はフィルムを用いた光学用部品。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、低吸湿性、低複屈折性、低誘電率性であり、流動性に優れ、加熱時の色変化が少なく、射出成形時の離型性に優れた樹脂組成物、この樹脂組成物を成形して得られる成形材、シート、フィルム及び光学用部品に関する。

【0002】

【従来の技術】反応活性のある不飽和結合を有する単量体の多くは、不飽和結合を開裂し連鎖反応を生起できる触媒と適切な反応条件を選択することにより多量体を製造することができる。一般に不飽和結合を有する単量体の種類は極めて多岐にわたることから、得られる樹脂の種類も豊富である。しかし、一般に高分子化合物と称する分子量1万以上の高分子量体を得ることができる単量体の種類は比較的少ない。例えば、エチレン、置換エチレン、プロピレン、置換プロピレン、スチレン、アルキルスチレン、アルコキシスチレン、ノルボルネン、各種アクリルエステル、ブタジエン、シクロペンタジエン、ジシクロペンタジエン、イソブレン、マレイン酸無水物、マレイミド、フマル酸エステル、アリル化合物等を代表的な単量体として挙げる事ができる。これらの単量体又は種々の組み合わせから多種多様な樹脂が合成されている。

【0003】これらの樹脂の用途は主に、比較的安価な民生機器の分野に限られており、半導体関連材料等のハイテク分野への適用は殆どない。その理由には、耐熱性、低吸湿性、誘電率の並立が達成できていないことが挙げられる。

【0004】例えば、半導体関連材料の分野では、近年の集積度の高密度化により従来の耐熱性、低吸湿性に加えて、低誘電率化が望まれている。低誘電率化を達成するためには樹脂中の極性基量を低減することが原理的に不可欠である。現在、半導体用樹脂にはポリイミドが多く用いられているが、樹脂骨格中に多くのカルボニル基を含有するため低誘電率化に苦慮しているのが現状である。対策として、フッ素を含有したモノマーを用いた研究が盛んに行われているが、十分な低誘電率化が達成できたとはいえない。また、樹脂価格が上がる、又は合成が煩雑である等の問題点がある。

【0005】他の方法としては、極性基を全く含まない炭化水素からなる重合体の合成が試みられている。例えば、環状ポリオレフィンと呼ばれる一群の高分子を挙げることができる。具体的にはポリノルボルネンを水添した高分子、又はポリジシクロペンテン及びその誘導体か

らなる高分子を挙げることができる。これらの高分子を、極めて低い誘電率を実現できることが可能であるが、耐熱性が低いことと、吸水率は極めて低いものの水の透過率が非常に高いという問題点がある。特に水の透過率の高さはポリオレフィンに共通した特徴であり、これを解決することは極めて困難と考えられる。

【0006】その他の方法には、チーグラナック触媒又はカミンスキー触媒を用いて合成したシンジオタクチックポリスチレンを挙げることができる。この高分子はベンゼン環の主鎖に対する立体位置が交互に反対方向に位置している構造を有しており、非常に高い耐熱性を実現していると同時に、極めて低い吸水率と水の透過性並びに誘電率も非常に低いレベルを達成することができる。しかし、この高分子は結晶性が非常に高いために基材への密着性が著しく悪い欠点があり、あらゆる溶媒に対して溶解しないため、加工方法が著しく限定されてしまうという問題点がある。すなわち、現在、上記の課題を解決できる高分子は未だ開発されていない。

【0007】一方、光学用途として光学レンズ、光導波路材等に用いられるポリマーには、アクリル系樹脂、ポリオレフィン系樹脂が挙げられる。アクリル系樹脂は優れた透明性及び加工性及び極めて低い複屈折性を有する特徴を挙げることができる。しかし、吸湿性が高く、耐熱性が比較的低い、靱性が低いという欠点がある。それに対して、ポリオレフィン系樹脂は優れた耐熱性と極めて低い吸湿性を有しているが、透明性と低複屈折性はアクリル系樹脂に及ばない。すなわち、アクリル樹脂にもポリオレフィン系樹脂にも一長一短があり、アクリル系樹脂とポリオレフィン系樹脂の欠点を相補う樹脂の開発が強く望まれている。

【0008】そこで、アクリル樹脂を改良するため、すなわち欠点である吸湿性の高さと耐熱性の低さを解決するために多くの検討がなされている。例えば、嵩高い置換基を有するモノマーを用いることによって吸湿性と耐熱性を改善する方法(特願平8-199901号公報、特許第2678029号公報)がある。この発明では確かにある程度の効果はあるものの、ポリオレフィン系樹脂の吸湿率の低さには及ばない。更に生じる欠点として、嵩高い置換基が側鎖に存在するが故に靱性及び強度の低下が著しく、特に成形加工時に破損しやすくなることが挙げられる。これを改善する目的で、柔軟性を付与するモノマーを共重合することによって靱性を付与しようとする方法があるが、耐熱性の低下は避けることができず、せっかくの嵩高い置換基を導入した効果が薄れてしまう。

【0009】ポリオレフィン系樹脂は、吸湿性の低さと耐熱性の高さは光学用樹脂として極めて大きな利点であるが、近年の光学機器の高度化に伴い、複屈折性の高さが大きな欠点となっており、ポリオレフィン系樹脂の複屈折性を低減する試みは最近特に活発に行われている。

【0010】例えば、特願平8-110402号公報を挙げることができる。この発明は、ポリオレフィン系樹脂の複屈折性と反対の符号の複屈折を有する樹脂又は低分子化合物を混合することによってその樹脂固有の複屈折を相殺し、樹脂混合物の複屈折を0にしようとするものである。この方法では、混合する樹脂とポリオレフィン系樹脂が完全に相溶化していることが必要である。ところが、上記発明ではポリオレフィン系樹脂と請求されている樹脂の相溶性が不十分であり、十分な効果が得られていない。

【0011】そこで、できる限り完全相溶化することを目的として、相溶化剤を第3成分として添加する方法がポリマーのアロイ化技術として行われており、具体的には米国特許4373065号に記載されている。両者を高い均一度で混合させるためには溶融状態又は溶液状態にしなければならないが、如何なる物理的方法を用いても高い均一度で全体的に複屈折のない実用的な高分子材料を得ることは極めて困難である。更に、第3成分を用いることにより、完全相溶化することが試みられているが、未だこの目的を達成する材料は見出されていない。

【0012】これらの課題を解決する方法として、特願平8-199901号公報が開示されている。この方法では、射出成形時に金型から製品を取り出す際に金型に樹脂の一部が残存してしまう、又は離型時に製品が破損する等の問題点がある。また、成形機中に長時間滞留した際に、製品の色が変化する欠点もある。

【0013】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、低吸湿性、低複屈折性、低誘電率性であり、流動性に優れ、加熱時の色変化が少なく、射出成形時の離型性に優れた樹脂組成物、この樹脂組成物を成形して得られる成形材、シート又はフィルム及び光学用部品を提供するものである。

【0014】

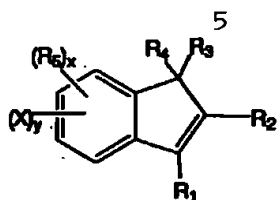
【課題を解決するための手段】本発明は、下記の重合体(A)、(B)、ジフェニルシリコン及びフェノール系酸化防止剤を含む樹脂組成物、これから得られる成形材、シート、フィルム及び光学用部品に関する。

(A) 下記一般式(I)で示されるインデン又はインデン誘導体を1種またはそれ以上含む重合体であり、側鎖にカルボキシ基及び/又はフェノール性水酸基を含有する重合体。

(B) スチレン又はスチレン誘導体と共重合可能な単量体から成る重合体であり、側鎖に複素環構造及び/又はアルキルアミノ基を含有する重合体。

【0015】

【化2】



(I)

【0016】(式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 は同一であっても異なっても良く、水素原子；窒素原子、酸素原子又はケイ素原子を含有する1価の炭化水素基；炭素数1～6のアルキル基；1価の芳香族系炭化水素基を示す。 X は水素原子、ハロゲン原子、アシル基、アルコキシ基、ニトリル基を示す。 x は0または1～4の整数を示し、 y は1～4の整数を示す。但し $x+y=4$ である。)

また、本発明の樹脂組成物は、飽和吸水率は0.4%以下であり、200%延伸時の複屈折率は $-2 \times 10^{-6} \sim -2 \times 10^{-6}$ の範囲にあることが好ましい。

【0017】さらに、本発明の樹脂組成物は、重合体(A)中のカルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基の含有量が重合体(A)の構成成分に対して0.005～5mol%であり、重合体(B)中の複素環構造及び／又はアルキルアミノ基の含有量が重合体(B)の構成成分に対して0.005～5mol%であることが好ましい。

【0018】また、本発明の樹脂組成物は、カルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基と、複素環構造及び／又はアルキルアミノ基のモル比は、0.1～10.0であることが好ましい。

【0019】本発明の樹脂組成物は、重合体(A)が、重合体(A)、(B)の総量に対して30～90重量%であることが好ましい。

【0020】本発明の樹脂組成物は、ジフェニルシリコーンの添加量は、樹脂組成物総量に対して0.01～1.0重量%であり、フェノール系酸化防止剤の添加量は、樹脂組成物総量に対して0.1～3.0重量%であることが好ましい。

【0021】

【発明の実施の形態】次に、本発明の低吸湿、低複屈折樹脂組成物及びこれを成形して得られる成形材、シート又はフィルムについて詳しく説明する。

【0022】本発明において、上記重合体(A)は、上記一般式(I)で示されるインデン又はインデン誘導体を1種またはそれ以上含む重合体であり、側鎖にカルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基を含有する樹脂である。

【0023】重合体(A)に用いられるインデン誘導体としては、上記一般式(I)で示されるものが挙げられ、上記式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 、 R_5 、 R_6 は同一であっても異なっても良く、水素原子；窒素原子、酸素原子又はケイ素原子を含有する1価の炭化水素基；炭

6

素数1～6のアルキル基；1価の芳香族系炭化水素基を示す。

【0024】窒素原子、酸素原子又はケイ素原子を含有する1価の炭化水素基としては、例えば、ジメチルアミノエチル基、ジエチルアミノエチル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペントキシ基、ヘキソキシ基、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基等が挙げられる。

【0025】炭素数1～6のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、2-メチルブチル基、3-メチルブチル基、*t*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、2-メチルペンチル基、3-メチルペンチル基、4-メチルペンチル基、1-メチルペンチル基、2,2-ジメチルブチル基、2,3-ジメチルブチル基、2,4-ジメチルブチル基、3,3-ジメチルブチル基、3,4-ジメチルブチル基、4,4-ジメチルブチル基、2-エチルブチル基、1-エチルブチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

【0026】1価の芳香族系炭化水素基としては、フェニル基、ナフチル基、ベンジル基等が挙げられる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。

【0027】 X は水素原子、ハロゲン原子、アシル基、アルコキシ基またはニトリル基を示す。 X におけるハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。

【0028】 X におけるアシル基としては、ホルミル基、アセチル基、プロピオニル基、ブチリル基、イソブチリル基等が挙げられる。

【0029】 X におけるアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基、ペントキシ基、ヘキソキシ基等が挙げられる。

【0030】また、 x は0または1～4の整数を示し、 y は1～4の整数を示す。但し $x+y=4$ である。

【0031】重合体(A)に用いる単量体としては、上記インデン又はインデン誘導体単独で又は2種以上で用いることができる。

【0032】上記置換基を有するインデン誘導体として、核置換メチルインデン、核置換エチルインデン、核置換プロピルインデン、核置換ブチルインデン等の核置換アルキルインデン、核置換クロロインデン、核置換ブロモインデン等が挙げられる。より具体的には、メチルインデン、 α -メチルインデン、 β -メチルインデン等が好ましく挙げられる。

【0033】重合体(A)の側鎖へカルボキシル基及び／又はフェノール性水酸基を導入する方法は、特に制限はなく、以下の方法が挙げられる。

①上記インデンまたはインデン誘導体を1種またはそれ以上含み、官能基を有する重合体を製造した後に、カルボキシル基又はフェノール性水酸基を有する化合物を反

応させることによって製造する。

【0034】重合体(A)の側鎖にカルボキシル基を導入する場合、例えば、上記インデンまたはインデン誘導体と、2-ヒドロキシルエチルメタクリレート(HEMA)等のアルコール性水酸基を有するビニル系単量体との共重合体を合成することにより、官能基としてアルコール性水酸基を有する重合体を得ることができる。そして、無水トリメリット酸等の酸無水物をHEMAのアルコール性水酸基に開環付加させることによりカルボキシル基を導入できる。

【0035】また、重合体(A)の側鎖にフェノール性水酸基を導入する場合、上記インデンまたはインデン誘導体と、無水マレイン酸等の酸無水部分を有するビニル系単量体との重合体を合成することにより、官能基として酸無水部分を有する重合体を得ることができる。そして、アミノフェノール等のアミノ基で無水マレイン酸の酸無水部分を開環させることにより、フェノール性水酸基を導入することができる。

②反応性を有するカルボキシル基又はフェノール性水酸基を有する単量体を、上記インデン又はインデン誘導体と通常の方法により共重合することによって製造する。

【0036】また、上記②で用いる反応性を有するカルボキシル基又はフェノール性水酸基を有する単量体としては、例えば、メタクリル酸、アクリル酸、マレイン酸、ビニルフェノール、ビニル安息香酸等を用いることができるが、これらに制限されるものではない。また、これらは1種またはそれ以上で用いることもできる。

【0037】本発明において、上記重合体(B)は、スチレン又はスチレン誘導体と共重合可能な単量体からなり、側鎖に複素環構造及び／又はアルキルアミノ基を含有する。本発明において、重合体(B)に用いるスチレン又はスチレン誘導体と共重合可能な単量体としては、例えば、核置換アルキルスチレン、核置換芳香族スチレン、 α -置換アルキルスチレン、 β -置換アルキルスチレン、核置換アルコキシスチレン、アルキルビニルエーテル、芳香族ビニルエーテル、イソブテン、ジイソブチレン等を挙げることができる。

【0038】核置換アルキルスチレンとしては、例えば、 α -メチルスチレン、 η -メチルスチレン、 p -メチルスチレン、 o -エチルスチレン、 η -エチルスチレン、 p -エチルスチレン、 o -プロピルスチレン、 η -プロピルスチレン、 p -プロピルスチレン、 o - n -ブチルスチレン、 η - n -ブチルスチレン、 p - n -ブチルスチレン、 o -イソブチルスチレン、 η -イソブチルスチレン、 p -イソブチルスチレン、 o - t -ブチルスチレン、 η - t -ブチルスチレン、 p - t -ブチルスチレン、 o - n -ペンチルスチレン、 η - n -ペンチルスチレン、 p - n -ペンチルスチレン、 o -2-メチルブチルスチレン、 η -2-メチルブチルスチレン、 p -2-メチルブチルスチレン、 o -3-メチルブチルスチレン、 η -3-メチルブチルスチレン、 p -3-メチルブチルスチレン、 o - t -ペンチルスチ

レン、 η - t -ペンチルスチレン、 p - t -ペンチルスチレン、 o - n -ヘキシルスチレン、 η - n -ヘキシルスチレン、 p - n -ヘキシルスチレン、 o -2-メチルペンチルスチレン、 η -2-メチルペンチルスチレン、 p -2-メチルペンチルスチレン、 o -3-メチルペンチルスチレン、 η -3-メチルペンチルスチレン、 p -3-メチルペンチルスチレン、 o -1-メチルペンチルスチレン、 η -1-メチルペンチルスチレン、 p -1-メチルペンチルスチレン、 o -2,2-ジメチルブチルスチレン、 η -2,2-ジメチルブチルスチレン、 p -2,2-ジメチルブチルスチレン、 o -2,3-ジメチルブチルスチレン、 η -2,3-ジメチルブチルスチレン、 p -2,3-ジメチルブチルスチレン、 o -2,4-ジメチルブチルスチレン、 η -2,4-ジメチルブチルスチレン、 p -2,4-ジメチルブチルスチレン、 o -3,3-ジメチルブチルスチレン、 η -3,3-ジメチルブチルスチレン、 p -3,3-ジメチルブチルスチレン、 o -3,4-ジメチルブチルスチレン、 η -3,4-ジメチルブチルスチレン、 p -3,4-ジメチルブチルスチレン、 o -4,4-ジメチルブチルスチレン、 η -4,4-ジメチルブチルスチレン、 p -4,4-ジメチルブチルスチレン、 o -2-エチルブチルスチレン、 η -2-エチルブチルスチレン、 p -2-エチルブチルスチレン、 o -1-エチルブチルスチレン、 η -1-エチルブチルスチレン、 p -1-エチルブチルスチレン、 o -シクロヘキシルスチレン、 η -シクロヘキシルスチレン、 p -シクロヘキシルスチレン、 o -クロロメチルスチレン、 η -クロロメチルスチレン、 p -クロロメチルスチレン、 o -クロロエチルスチレン、 η -クロロエチルスチレン、 p -クロロエチルスチレン等を用いることができるが、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を組み合わせて用いることができる。

【0039】上記の核置換芳香族スチレンとしては、例えば、 o -フェニルスチレン、 η -フェニルスチレン、 p -フェニルスチレン等を用いることができる。

【0040】 α -置換アルキルスチレンとしては、例えば、 α -メチルスチレン、 α -エチルスチレン、 α -プロピルスチレン、 α - n -ブチルスチレン、 α -イソブチルスチレン、 α - t -ブチルスチレン、 α - n -ペンチルスチレン、 α -2-メチルブチルスチレン、 α -3-メチルブチルスチレン、 α - t -ペンチルスチレン、 α - n -ヘキシルスチレン、 α -2-メチルペンチルスチレン、 α -3-メチルペンチルスチレン、 α -1-メチルペンチルスチレン、 α -2,2-ジメチルブチルスチレン、 α -2,3-ジメチルブチルスチレン、 α -2,4-ジメチルブチルスチレン、 α -3,3-ジメチルブチルスチレン、 α -3,4-ジメチルブチルスチレン、 α -4,4-ジメチルブチルスチレン、 α -2-エチルブチルスチレン、 α -1-エチルブチルスチレン、 α -シクロヘキシルスチレン等を用いることができるが、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を組み合わせて用いることができる。

【0041】 β -置換アルキルスチレンとしては、例えば、 β -メチルスチレン、 β -エチルスチレン、 β -プロピルスチレン、 β - n -ブチルスチレン、 β -イソブチルス

チレン、 β - ϵ -ブチルスチレン、 β - n -ペンチルスチレン、 β -2-メチルブチルスチレン、 β -3-メチルブチルスチレン、 β - ϵ -ペンチルスチレン、 β - n -ヘキシルスチレン、 β -2-メチルペンチルスチレン、 β -3-メチルペンチルスチレン、 β -1-メチルペンチルスチレン、 β -2,2-ジメチルブチルスチレン、 β -2,3-ジメチルブチルスチレン、 β -2,4-ジメチルブチルスチレン、 β -3,3-ジメチルブチルスチレン、 β -3,4-ジメチルブチルスチレン、 β -4,4-ジメチルブチルスチレン、 β -2-エチルブチルスチレン、 β -1-エチルブチルスチレン、 β -シクロヘキシルスチレン等を用いることができるが、これらの単独又は2種以上を組み合わせる用いることができる。

【0042】上記の核置換アルコキシルスチレンとしては、例えば、 o -メトキシルスチレン、 m -メトキシルスチレン、 p -メトキシルスチレン、 o -エトキシルスチレン、 m -エトキシルスチレン、 p -エトキシルスチレン、 o -プロポキシルスチレン、 m -プロポキシルスチレン、 p -プロポキシルスチレン、 o - n -ブトキシルスチレン、 m - n -ブトキシルスチレン、 p - n -ブトキシルスチレン、 o -イソブトキシルスチレン、 m -イソブトキシルスチレン、 p -イソブトキシルスチレン、 o - t -ブトキシルスチレン、 m - t -ブトキシルスチレン、 p - t -ブトキシルスチレン、 o - n -ペントキシルスチレン、 m - n -ペントキシルスチレン、 p - n -ペントキシルスチレン、 o -2-メチルブトキシルスチレン、 m -2-メチルブトキシルスチレン、 p -2-メチルブトキシルスチレン、 o -3-メチルブトキシルスチレン、 m -3-メチルブトキシルスチレン、 p -3-メチルブトキシルスチレン、 o - t -ペントキシルスチレン、 m - t -ペントキシルスチレン、 p - t -ペントキシルスチレン、 o - n -ヘキソキシルスチレン、 m - n -ヘキソキシルスチレン、 p - n -ヘキソキシルスチレン、 o -2-メチルペントキシルスチレン、 m -2-メチルペントキシルスチレン、 p -2-メチルペントキシルスチレン、 o -3-メチルペントキシルスチレン、 m -3-メチルペントキシルスチレン、 p -3-メチルペントキシルスチレン、 o -1-メチルペントキシルスチレン、 m -1-メチルペントキシルスチレン、 p -1-メチルペントキシルスチレン、 o -2,2-ジメチルブトキシルスチレン、 m -2,2-ジメチルブトキシルスチレン、 p -2,2-ジメチルブトキシルスチレン、 o -2,3-ジメチルブトキシルスチレン、 m -2,3-ジメチルブトキシルスチレン、 p -2,3-ジメチルブトキシルスチレン、 o -2,4-ジメチルブトキシルスチレン、 m -2,4-ジメチルブトキシルスチレン、 p -2,4-ジメチルブトキシルスチレン、 o -3,3-ジメチルブトキシルスチレン、 m -3,3-ジメチルブトキシルスチレン、 p -3,3-ジメチルブトキシルスチレン、 o -3,4-ジメチルブトキシルスチレン、 m -3,4-ジメチルブトキシルスチレン、 p -3,4-ジメチルブトキシルスチレン、 o -4,4-ジメチルブトキシルスチレン、 m -4,4-ジメチルブトキシルスチレン、 p -4,4-ジメチルブトキシルスチレン、 o -2-エチルブトキシルスチレン、 m -2-エチルブトキシルスチレン、 p -2-エチルブトキシルスチレン、 o -1-エチルブトキシルスチレン、 m -1-エチルブトキシルスチレン、 p -1-エチルブトキシルスチレン、 o -シクロヘキソキシルスチレン、 m -シクロヘキ

ソキシルスチレン、 p -シクロヘキソキシルスチレン、 o -フェノキシルスチレン、 m -フェノキシルスチレン、 p -フェノキシルスチレン等を用いることができるが、これらの単独又は2種以上を組み合わせる用いることができる。

【0043】上記のアルキルビニルエーテルのアルキルには特に制限はなく、例えば、メチル、エチル、プロピル、 n -ブチル、イソブチル、 t -ブチル、 n -ペンチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル、 t -ペンチル、 n -ヘキシル、2-メチルペンチル、3-メチルペンチル、4-メチルペンチル、1-メチルペンチル、2,2-ジメチルブチル、2,3-ジメチルブチル、2,4-ジメチルブチル、3,3-ジメチルブチル、3,4-ジメチルブチル、4,4-ジメチルブチル、2-エチルブチル、1-エチルブチル、シクロヘキシル等のアルキルを有するアルキルビニルエーテルを挙げることができるが、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を組み合わせる用いることができる。

【0044】上記の芳香族ビニルエーテルとしては、例えば、フェニルビニルエーテル等を挙げることができる。

20 【0045】重合体(B)の側鎖へ複素環構造及び/又はアルキルアミノ基を導入する方法は、特に制限はなく、以下の方法が挙げられる。

①上記スチレンまたはスチレン誘導体と共重合可能な単量体から成り、官能基を有する重合体を製造した後に、複素環構造又はアルキルアミノ基を有する化合物を反応させることによって製造する。

【0046】重合体(B)の側鎖に複素環構造及び/又はアルキルアミノ基を導入する場合、例えば、上記スチレンまたはスチレン誘導体と、無水マレイン酸等の酸無水部分を有するビニル系単量体との重合体を合成することにより、官能基として酸無水部分を有する重合体を得ることができる。そして、アミノピリジン、ジエチルアミノエチルアミン等のアミノ基で無水マレイン酸の酸無水部分を開環させることにより、複素環構造及び/又はアルキルアミノ基を導入することができる。

②反応性を有する複素環構造又はアルキルアミノ基を有する単量体を、スチレンまたはスチレン誘導体と共重合可能な単量体と通常の方法により共重合することによって製造する。

40 【0047】上記②で用いる反応性を有する複素環構造又はアルキルアミノ基を有する単量体としては、例えば、ビニルピリジン、ビニルフラン、ビニルチオフェン、ビニルオキサゾール、ピリジルビニルエーテル、ピリジルマレイミド、ジエチルアミノエチルメタクリレート、ジメチルアミノエチルメタクリレート等を用いることができるが、これらに制限されるものではない。また、これらは1種またはそれ以上で用いることもできる。

50 【0048】本発明において、重合体(A)中のカルボキシル基及び/又はフェノール性水酸基の含有量は、重

合体(A)の構成成分に対して0.005~5mol%であることが好ましく、より好ましくは、0.01~2mol%である。重合体(A)中のカルボキシル基及び/又はフェノール性水酸基の含有量が0.005mol%未満であると、樹脂組成物の透明性は低下する傾向があり、逆に5mol%を越えると、樹脂組成物の吸水率が增大する傾向がある。

【0049】重合体(B)中の複素環構造及び/又はアルキルアミノ基の含有量は、重合体(B)の構成成分に対して0.005~5mol%であることが好ましく、より好ましくは0.01~2mol%である。重合体(B)中の複素環構造及び/又はアルキルアミノ基の含有量が0.005mol%未満であると、樹脂組成物の透明性は低下する傾向があり、逆に5mol%を越えると、樹脂組成物の吸水率が增大する傾向がある。

【0050】本発明において、カルボキシル基及び/又はフェノール性水酸基と複素環構造及び/又はアルキルアミノ基のモル比は、0.1~10.0であることが好ましい。この比率が0.1未満であるか、10.0を越えると、樹脂組成物の透明性が低下する傾向がある。

【0051】本発明において上記(A)、(B)の重合体の製造方法には特に制限はなく、上述の単量体を用いて、通常の方法により製造することが出来る。例えば、カチオン重合、アニオン重合、ラジカル重合、リビングラジカル重合等によって製造することができる。上記重合方法は用いる触媒によって選択可能である。

【0052】カチオン重合に用いる触媒には特に制限はなく、公知の触媒を用いることができる。例えば、塩化アルミニウム、塩化鉄、塩化錫、塩化亜鉛、塩化ストロンチウム、塩化スカンジウム等のルイス酸、硫酸、パラトルエンスルホン酸、塩酸、硝酸等のプロトン酸、塩化アルキルアルミニウム、活性白土等を用いることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を用いることもできる。

【0053】アニオン重合に用いる触媒には特に制限はなく、公知の触媒を用いることができる。例えば、ブチリチウム等を用いることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。

【0054】ラジカル重合に用いる触媒には特に制限はなく、公知の触媒を用いることができる。例えば、ベンゾイルパーオキシド、ラウリルパーオキシド、メチルエチルケトンパーオキシド等の過酸化物を用いることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を用いることもできる。

【0055】リビングラジカル重合に用いる触媒には特に制限はなく、公知の触媒を用いることができる。例えば、ベンゾイルパーオキシドとニトロキシド化合物の併用系、Ru錯体/アルコキシアルミニウム併用系等を挙

げることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を用いることもできる。

【0056】重合方法は、通常の溶液重合、懸濁重合、塊状重合等の方法で合成することができる。特に、溶液重合方法が最も好ましい。

【0057】用いる溶媒には特に制限はなく、公知の溶媒を用いることができる。例えば、クロロメタン、ジクロロメタン、トリクロロメタン、テトラクロロメタン、クロロエタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロエチレン、ジクロロエチレン、ニトロベンゼン、ジニトロベンゼン、トリニトロベンゼン、メチルベンゼン、ジメチルベンゼン、トリメチルベンゼン、エチルベンゼン、ジエチルベンゼン、トリエチルベンゼン等のアルキルベンゼン類、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類、MMA、酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル類を挙げることができる。ここに示したものは一例であり、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を用いることもできる。

【0058】重合温度は、-100℃~180℃間での範囲で行うことが好ましい。-100℃未満で重合反応を行うと反応性が低下し、充分な高分子量体を得ることが難しい。180℃を超える温度では、成長末端の反応性が高すぎるため、連鎖移動反応が著しく多量に生起するために高分子量体が得られにくくなる傾向がある。

【0059】また本発明において、重合体(A)の好ましい重量平均分子量は20000以上が好ましく、より好ましくは50000以上、更に好ましくは80000以上である。

【0060】重合体(B)の好ましい重量平均分子量は20000以上が好ましく、より好ましくは50000以上、更に好ましくは80000以上である。

【0061】重量平均分子量を上記範囲とすることによって、低屈折性、透明性、高耐熱性となることから好ましい。調整方法としては、重合温度、連鎖移動剤の量の調節により可能である。また、測定方法はテトロフラン溶液にてGPC測定により行うことができる。

【0062】上記方法で得られた重合体(A)、(B)は、通常の方法で単離して樹脂組成物に用いることが出来る。

【0063】本発明においては、重合体(A)は、重合体(A)、(B)の総量に対して30~90重量%であることが好ましく、60~85重量%であることがより好ましい。重合体(A)が、重合体(A)、(B)の総量に対して30重量%未満、又は90重量%を越えると複屈折率の絶対値が増大する傾向がある。

【0064】本発明に用いるジフェニルシリコーンは、粘度は特に制限はなく、いかなる粘度のものを用いてもよい。ジフェニルシリコーンの添加量は、樹脂組成物総

量に対して0.01~1.0重量%の範囲で用いることが好ましい。さらには0.05~0.8重量%の範囲がより好ましい。0.01重量%より少ないと、射出成形時の金型からの離型性に対して効果が低下する傾向があり、1.0重量%を越えると耐熱性が低下する傾向がある。

【0065】本発明に用いるフェノール系酸化防止剤としては、例えば、ジブチルヒドロキシトルエン、アルキル化フェノール、4,4'-チオビス(6-tert-ブチル-3-メチルフェノール)、4,4'-ブチリデンビス(6-tert-ブチル-3-メチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-エチル-6-tert-ブチルフェノール)、2,6-ジ-tert-ブチル-4-エチルフェノール、1,1-トリリス(2-メチル-4-ヒドロキシ-5-tert-ブチルフェニル)ブタン、n-オクタデシル-3-(4-ヒドロキシ-3,5-tert-ジブチルフェニル)プロピオネート、テトラキス(メチレン-3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、ジラウリルチオジプロピオネート、ジステアリルチオジプロピオネート、ジミリスチルチオジプロピオネート等を用いることができるが、これらに限定されるものではない。これらの単独又は2種以上を組み合わせて用いることができる。フェノール系酸化防止剤の添加量は、樹脂組成物総量に対して0.1~3.0重量%であることが好ましく、さらには0.5~2.0重量%の範囲がより好ましい。0.1重量%より少ないと色相の変化を抑制する効果が少なく、3.0重量%を越えると樹脂の透明性及び耐熱性が低下する傾向がある。

【0066】本発明における重合体(A)、(B)及びジフェニルシリコンとフェノール系酸化防止剤の混合方法は、特に制限はなく、各重合体及びジフェニルシリコン及びフェノール系酸化防止剤を所定量を秤取し、これらを溶融混練することによって製造することができるし、各々の重合体、ジフェニルシリコン及びフェノール系酸化防止剤をトルエン、THF、NMP等の溶媒に溶解した後、溶媒を除去することによっても製造することができる。

【0067】上記のようにして得られる本発明の樹脂組成物は、飽和吸水率が0.4%以下であり、200%延伸時の複屈折率が $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-6}$ の範囲であることが好ましい。より好ましい飽和吸水率は0.2%以下であり、より好ましい200%延伸時の複屈折率は $-1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-6}$ である。

【0068】飽和吸水率が0.4%を超えると吸水時の屈折率の変化が大きくなり好ましくない。また、200%延伸時の複屈折率が $-2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-6}$ の範囲をはずれると直線偏光が円偏光に大きく変化することがあるため好ましくない。

【0069】飽和吸水率を上記範囲とするためには、重合体(A)中のカルボキシル基及び/又はフェノール性

水酸基の含有量と、重合体(B)中の複素環構造及び/又はアルキルアミノ基の含有量が各々0.005~5mol%を満たすようにすればよい。

【0070】200%延伸時の複屈折率を上記範囲とするためには、重合体(A)が重合体(A)、(B)の総量に対する割合を30~90重量%にすればよい。

【0071】本発明における飽和吸水率(%)は、70℃の温水中に試験片を浸漬し、吸水率が飽和に達した時点の吸水率を測定することにより算出することができる。「吸水が飽和に達したとき」とは70℃温水中にそれ以上の時間放置しても吸水率が変化しなくなった状態のときである。

【0072】また、複屈折率は、得られた成形材をそのガラス転移温度より5℃低い温度で200%延伸したものの複屈折率を、例えば、エリアソメータAEP-100型(島津製作所製)を用いて測定できる。測定条件は、温度:25℃、レーザ光波長:632.8nmである。なお、成形材のガラス転移温度の測定は以下のように求めることができる。ガラス転移温度の測定は、DSC(示差走査熱量測定)によって、測定することができる。DSCの測定は、昇温速度10℃/minの条件で行う。

【0073】本発明になる樹脂組成物は、成形材、シート又はフィルムに加工することができる。本発明において、樹脂組成物を成形材、シート又はフィルムとする際に、必要に応じて任意の成分を加えることができる。それらは、低誘電率、低吸湿率、高耐熱性等の特性を満足できる半導体関連材料、または光学用部品、更には、塗料、感光性材料、接着剤、汚水処理剤、重金属捕集剤、イオン交換樹脂、帯電防止剤、酸化防止剤、防曇剤、防錆剤、防染剤、殺菌剤、防虫剤、医用材料、凝集剤、界面活性剤、潤滑剤、個体燃料用バインダー、導電処理剤等への適用も可能である。

【0074】本発明の成形材を用いた光学用部品としては、CD用ピックアップレンズ、DVD用ピックアップレンズ、FAX用レンズ、LBP用レンズ、オリゴンミラー、プリズム等が挙げられる。

【0075】

【実施例】以下に、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらにより制限されるものではない。

【0076】なお、実施例中にて用いた評価方法は以下の通りである。

(1) 重量平均分子量

合成した重合体の分子量は、テトラヒドロフラン溶液にてGPC測定により求めた。

(2) 飽和吸水率

サンプルの吸水率は、70℃の温水中にサンプルを浸漬し、吸水率が飽和に達した時点の吸水率を測定した。

(3) 耐熱性(Tg)

耐熱性の測定は、DSC (示差走査熱量測定) によって、ガラス転移温度を測定することで評価した。DSCの測定は、昇温速度10℃/minの条件で行った。

(4) 比誘電率

ヒューレットパッカード社製 プレジジョンLCRメータ 4284A型を用いて、20KV、1KHz、25℃の条件で測定した。

(5) 曲げ強度

試験片の曲げ強度は、島津製作所(株)製 AGS-1000Gを用いて行った。試験は室温にて、テストスピード0.5mm/min、スパン20mm、試験片幅10mmの条件で行った。

(6) 透過率

作成サンプルの透過率は、日本分光製V-570を用いて、25℃にて測定した。測定波長は400~800nmの範囲にて測定した透過率を全光線透過率とした。

(7) 複屈折率

得られた成形材をそのガラス転移温度の5℃低い温度で150%延伸したものの複屈折を測定した。測定機器は、島津製作所製エリプソメータAEP-100型を用いて、25℃にて測定した。レーザ光波長は632.8nmにて行った。

(8) 離型性

射出成形時の離型性は、実際に樹脂を射出成形し、金型から離型視多彩の樹脂の表面状態及び破損の有無を目視で確認した。

(9) 加熱時の色変化

樹脂を射出成形機中に230℃にて30分間滞留した後、射出成形し、得られた成形材の色相を色度計にて測定した。

(10) 流動性 (MI)

樹脂組成物の流動性は、220℃、荷重5kgfでのメルトフローレートを測定することにより求めた。

【0077】

【実施例1】インデン9.95g、ビニル安息香酸0.05g及び塩化メチレン30.0gを100mLフラスコ内に投入し、-40℃でFeCl₃0.01gを添加し、24時間反応させた。その後、室温にて、この反応混合液にメタノール0.05gを添加した後、攪拌し均一溶液を得た。得られた均一溶液を100gのメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿9.8gを得た。この白色沈殿を減圧下で乾燥し、重合体(A)を得た。この重合体の重量平均分子量は97000であった。

【0078】次に、スチレン19.9g、ビニルピリジン0.1g及びベンゾイルパーオキシド0.1gを100mLのフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、密封し、70℃で振とうしながら12時間反応させた。得られた重合体を粉砕した後、メタノールで洗浄した後、50℃にて約8時間乾燥して、重合体(B)を得た。得られた重合体の重量平均分子量は250000で

あった。

【0079】重合体(A)6.0gと重合体(B)4.0g及び粘度500CSのジフェニルシリコン0.01gとn-オクタデシル-3-(4-ヒドロキシ-3,5-ジブチルフェニル)プロピオネート0.05gをトルエン20gに溶解させ、約300gのメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を40℃で6時間乾燥させ、目的の樹脂組成物を得た。この樹脂組成物を溶融プレスすることによって厚さ2mmの成形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表1に示す。

【0080】

【実施例2】インデン9.95g、ビニル安息香酸0.05g及び塩化メチレン30.0gを100mLフラスコ内に投入し、-40℃でFeCl₃0.01gを添加し、24時間反応させた。その後、室温にて、この反応混合液にメタノール0.05gを添加した後、攪拌し均一溶液を得た。得られた均一溶液を100gのメタノール中に徐々に添加し、白色沈殿9.8gを得た。この白色沈殿を減圧下で乾燥し、重合体(A)を得た。この重合体の重量平均分子量は97000であった。

【0081】次に、スチレン19.9g、ジエチルアミノエチルメタクリレート0.1g及びベンゾイルパーオキシド0.1gを100mLのフラスコ内に投入し、攪拌して溶解した後、密封し、70℃で振とうしながら12時間反応させた。得られた重合体を粉砕した後、メタノールで洗浄した後、50℃にて約8時間乾燥して、重合体(B)を得た。得られた重合体の重量平均分子量は250000であった。

【0082】重合体(A)6.0gと重合体(B)4.0g及び粘度500CSのジフェニルシリコン0.01gとn-オクタデシル-3-(4-ヒドロキシ-3,5-ジブチルフェニル)プロピオネート0.05gをトルエン20gに溶解させ、約300gのメタノールに添加して固体を析出させた。この固体を40℃で6時間乾燥させ、目的の樹脂組成物を得た。この樹脂組成物を溶融プレスすることによって厚さ2mmの成形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表1に示す。

【0083】

【比較例1】重合体(A)の合成にインデン10.0gのみを用い、重合体(B)の合成に、スチレン20.0gのみを用いたこと以外は実施例1と全く同様に行い、厚さ2mmの成形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記評価を行った。評価結果を表1に示す。

【0084】

【比較例2】粘度500CSのジフェニルシリコン0.01gとn-オクタデシル-3-(4-ヒドロキシ-3,5-ジブチルフェニル)プロピオネート0.05gを用いたこと以外は実施例1と全く同様に行い、厚さ2mmの成

形材を作製し、試験片とした。この試験片を用いて上記 *【0085】
評価を行った。評価結果を表1に示す。 * 【表1】

項目	単位	実施例 1		実施例 2		比較例 1		比較例 2	
		重合体(A)	重合体(B)	重合体(A)	重合体(B)	重合体(A)	重合体(B)	重合体(A)	重合体(B)
混合比	重量%	80	40	80	40	80	40	80	40
分子量	g/mol	97000	250000	97000	250000	15000	250000	15000	250000
1,4- <i>trans</i> -構造	mol%	0.55	0	0.55	0	0.55	0	0.65	0
1,4- <i>cis</i> -構造	mol%	0	0.55	0	0.55	0	0	0	0.55
(重合体 A/B) 比	mol%	1.0		1.0		—		1.0	
酸化防止剤	重量%	0.5		0.5		0.5		0	
UV吸収剤	重量%	0.1		0.1		0.1		0	
流動性MI	g/10分	1.5		1.4		1.5		1.4	
吸水率	%	0.10		0.09		0.10		0.09	
耐熱性Tg	℃	147		148		147		148	
比誘電率	—	2.3		2.2		2.3		2.2	
曲げ強度	MPa	80		80		80		80	
伸び率	%	85		42		85		85	
複屈折率	—	1.0×10^{-4}		1.0×10^{-4}		5.0×10^{-4}		1.0×10^{-4}	
色相変化	—	0.12		0.16		0.12		2.5	
離型性	—	O		O		O		X	

【0086】

【発明の効果】本発明により、低吸湿性、低複屈折性、低誘電率性であり、流動性に優れ、加熱時の色変化が少なく、射出成形時の離型性に優れた樹脂組成物を提供す※

20※ることができる。またこの樹脂組成物を成形して得られる成形材、シートまたはフィルムを用いて、低吸湿性、低複屈折性、低誘電率性の光学用部品を提供することができる。

フロントページの続き

(51)Int. Cl.⁷

識別記号

FI

テマコード(参考)

C08L 45/00

C08L 45/00

83/04

83/04

G02B 1/04

G02B 1/04

(72)発明者 山中 哲郎

千葉県市原市五井南海岸14番地 日立化成
工業株式会社五井事業所内

(72)発明者 吉田 明弘

千葉県市原市五井南海岸14番地 日立化成
工業株式会社五井事業所内

(72)発明者 牛窪 恵子

千葉県市原市五井南海岸14番地 日立化成
工業株式会社五井事業所内

Fターム(参考) 4F071 AA21X AA22X AA30X AA39

AA67 AA78 AA86 AA88 AC11

AE05 AF10 AF30 AF40 AF45

AH19 BB03 BC01

4J002 BC04X BC08X BC09X BC12X

BK00W CE00W CP033 EJ026

EJ036 EJ066 EV066 EV076

FD076 GP00

Art Unit: 1713

Any inquiry concerning this communication or earlier communications from the examiner should be directed to Rip A. Lee whose telephone number is (703)306-0094. The examiner can be reached on Monday through Friday from 9:00 AM - 5:00 PM.

If attempts to reach the examiner by telephone are unsuccessful, the examiner's supervisor, David Wu, can be reached at (703)308-2450. The fax phone number for the organization where this application or proceeding is assigned is (703)746-7064. Any inquiry of a general nature or relating to the status of this application or proceeding should be directed to the receptionist whose telephone number is (703)308-0661.

ral

June 6, 2003



DAVID W. WU
SUPERVISORY PATENT EXAMINER
TECHNOLOGY CENTER 1700